

(19)



Eur päisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) Veröffentlichungsnummer: **0 348 693 B1**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag der Patentschrift: **22.03.95**

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: **C07F 7/18**

(21) Anmeldenummer: **89110116.4**

(22) Anmeldetag: **05.06.89**

Teilanmeldung 94111674.1 eingereicht am  
05/06/89.

(54) Verfahren zur Herstellung von Diorganodialkoxysilanen.

(30) Priorität: **25.06.88 DE 3821483**

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
**03.01.90 Patentblatt 90/01**

(45) Bekanntmachung des Hinweises auf die  
Patenterteilung:  
**22.03.95 Patentblatt 95/12**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**AT BE CH DE ES FR GB IT LI NL SE**

(56) Entgegenhaltungen:  
**LU-A- 28 740**  
**US-A- 4 777 278**

**CHEMICAL ABSTRACTS, Band 56, Nr. 7, 2.**  
**April 1962, Spalte 7344, Zusammenfas-**  
**sungNr. 7344h, Columbus, Ohio, US; S.**  
**CHRZCZONOWICZ et al.: "Bifunctional silico-**  
**nemonomers-hydrolysis and condensation.**  
**III. Hydrolysis of dial-**  
**kyl(oraryl)dimethoxy-silanes", & ROCZNIKI**  
**CHEM. 34, 1667-74(1960)**

(73) Patentinhaber: **Witco GmbH**  
**Postfach 1620**  
**D-59180 Bergkamen (DE)**

(72) Erfinder: **Graefe, Jürgen, Dr. Dipl.-Chem.**  
**Mälzerstrasse 6**  
**D-4714 Selm-Cappenberg (DE)**  
Erfinder: **Uzick, Wolfram, Dr. Dipl.-Chem.**  
**Gäuseland 13**  
**D-4600 Dortmund 50 (DE)**  
Erfinder: **Weinberg, Udo**  
**Im Grevelnkamp 20**  
**D-4709 Bergkamen (DE)**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen durch Umsetzung von Tetraalkoxysilanen bzw. Monoorganotrialkoxysilanen mit Grignard-Verbindungen.

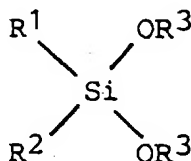
5 Disubstituierte Dialkoxysilane der allgemeinen Struktur  $R_2Si(OR)_2$  werden unter anderem als Stereomodifizier in Katalysatoren zur Herstellung von Polypropylen (PP) eingesetzt (EP-A-0 231 878). Vorteilhaft sind dabei disubstituierte Dialkoxysilane der Formel  $R^1R^2Si(OR^3)_2$ , insbesondere solche mit verzweigten Alkylresten  $R^1$  und  $R^2$  (EP-A-0 250 229 und DE-A-36 29 932).

Es ist seit längerer Zeit bekannt, daß disubstituierte Dialkoxysilane  $R^1R^2Si(OR^3)_2$  durch Grignard-Alkylierung oder -Arylierung von Tetraalkoxysilanen bzw. vereinzelt auch von monosubstituierten Trialkoxysilanen mit Grignard-Verbindungen hergestellt werden können (Houben-Weyl, Methoden der Organischen Chemie, XIII/5, 180 ff).

Als Reaktionsprodukte werden jedoch in der Regel Gemische von Diorganodialkoxysilanen mit Monoorganotrialkoxysilanen und/oder Triorganomonoalkoxysilanen erhalten, so daß zur Isolierung der gewünschten Diorganodialkoxysilane nachfolgend eine Trennoperation erforderlich ist und damit bei erhöhten Herstellungskosten eine relativ geringe Ausbeute in Kauf genommen werden muß (Z. Lasocki, Bull. Acad. Polon. Sci., Ser. Sci Chim. 12 (5), 281-287 (1964)).

Es wurde nun überraschend gefunden, daß durch Umsetzung von Monoorganotrialkoxysilanen  $R^1Si(OR^3)_3$  bzw. Tetraalkoxysilanen  $Si(OR^3)_4$  mit Grignard-Verbindungen  $R^2MgX$  in geeigneten Lösungsmitteln in Abhängigkeit von der Struktur der Reste  $R^1$  und  $R^2$  bestimmte Diorganodialkoxysilane  $R^1R^2Si(OR^3)_2$  mit hoher Selektivität in hoher Ausbeute zugänglich sind.

Die Erfindung betrifft somit ein Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen der allgemeinen Formel



durch Umsetzung von Tetraalkoxysilanen der Formel  $Si(OR^3)_4$  bzw. Monoorganotrialkoxysilanen der Formel  $R^1Si(OR^3)_3$  mit Grignard-Verbindungen der Formel  $R^2MgX$  ( $x = Cl, Br, J$ ) in geeigneten Lösungsmitteln, das durch die folgende Bedeutung der Reste R gekennzeichnet ist:

$R^1 =$  Verzweigte Alkylgruppe mit 3 - 10 C-Atomen mit sekundärem  $\alpha$ - oder  $\beta$ -C-Atom oder Cycloalkylgruppe mit 3 bis 10 C-Atomen  
 $R^2 =$   $R^1$  oder n-Alkylgruppe mit 3 - 10 C-Atomen  
 $R^3 =$  Alkylgruppe mit 1 bis 5 C-Atomen, wobei die Reste  $R^3$  gleich oder verschieden sein können, mit der Maßgabe, daß  $R^1$  und  $R^2$  nicht gleichzeitig Cycloalkyl sein können und wobei im Falle von Tetraalkoxysilanen  $R^2$  nicht n-Alkyl bedeutet.

Bevorzugt sind dabei für die Reste  $R^1$  und  $R^2$  verzweigte Alkylgruppen mit 3 bis 6 C-Atomen bzw. Cycloalkylgruppen mit 5 bis 7 C-Atomen und für den Rest  $R^3$  Methyl- oder Ethylgruppen.

Gegebenenfalls unter Verwendung eines geringen Überschusses der Grignard-Verbindung  $R^2MgX$  läßt sich das Monoorganotrialkoxysilan  $R^1Si(OR^3)_3$  bzw. das Tetraalkoxysilan  $Si(OR^3)_4$  nahezu quantitativ in das Diorganodialkoxysilan  $R^1R^2Si(OR^3)_2$  überführen, ohne daß unter weiterer Alkylierung die Bildung des Triorganomonoalkoxysilans  $R^1R^2SiOR^3$  beobachtet wird.

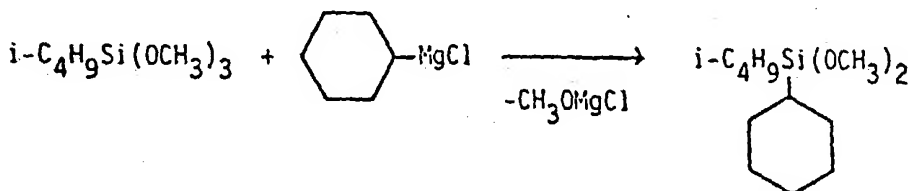
Die Umsetzung wird vorteilhaft bei Temperaturen von etwa 0 ° bis 90 °C durchgeführt.

Als Lösungsmittel kommen insbesondere Dialkylether in Frage, die aufgrund ihrer physikalischen Eigenschaften in dem genannten Temperaturbereich verwendbar sind.

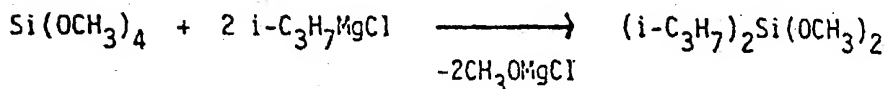
Der Siedepunkt des Lösungsmittels sollte einerseits nicht zu niedrig sein und in einem solchen Bereich liegen, daß die Umsetzungstemperatur problemlos eingehalten werden kann, andererseits aber auch nicht so hoch sein, daß die Entfernung des Lösungsmittels aus dem Umsetzungsprodukt Schwierigkeiten bereitet. Besonders geeignet sind für das erfindungsgemäße Verfahren Dialkylether, wie Diethylether und insbesondere Methyl-tert.-butylether.

Di ansonsten für Grignard-Reaktion vielfach verwendeten cyclischen Ether Tetrahydrofuran oder 1,4-Dioxan haben sich für das erfindungsgemäße Verfahren als weniger geeignet herausgestellt.

Das erfindungsgemäße Verfahren soll beispielhaft anhand der Herstellung von Isobutylcyclohexyldimethoxysilan ( $R^1 = i-C_4H_9$ ,  $R^2 = c-C_6H_{12}$ ,  $R^3 = CH_3$ ) aus Isobutyltrimethoxysilan  $R^1Si(OR^3)_3$  ( $R^1 = i-C_4H_9$ ,  $R^3 = CH_3$ ) (Gleichung 1) und Diisopropyldimethoxysilan ( $R^1 = R^2 = i-C_3H_7$ ,  $R^3 = CH_3$ ) aus Tetramethoxysilan ( $R^3 = CH_3$ ) (Gleichung 2) gezeigt werden:



Gleichung 1  
(s. auch Beispiel 1)



Gleichung 2  
(s. auch Beispiel 6)

Vorteilhaft für die Aufarbeitung der Reaktionsmischung und eine relativ hohe Reinheit des Produkts ist die Zersetzung der überschüssigen Grignard-Verbindung mit stöchiometrischen Mengen eines Alkohols  $R^3OH$ . Nach Abtrennung des festen Nebenprodukts  $R^3OMgX$  durch Filtration oder Zentrifugieren sowie nachfolgendem Abdampfen des Lösungsmittels erhält man die Diorganodialkoxysilane in Ausbeuten > 95 % und Reinheiten > 97 %, wobei diese Reinheiten dem eingangs genannten Verwendungszweck voll auf genügen und somit eine zusätzliche Reinigungsoperation erübrigen.

Eine weitere Vereinfachung der Herstellung von Diorganodialkoxysilanen resultiert, wenn man in Anlehnung an eine prinzipiell bekannte Vorgehensweise (Chemical Abstracts 32,7892; 105, 134116 n; 105, 134117 p, Columbus Ohio (USA)) auf die separate Herstellung der Grignard-Verbindung  $R^2MgX$  verzichtet und das Monoorganotrialkoxysilan  $R^1Si(OR^3)_3$  bzw. Tetraalkoxysilan  $Si(OR^3)_4$  in Gegenwart eines geeigneten Lösungsmittels direkt mit metallischem Magnesium und einem Organohalogenid  $R^2X$  umsetzt.

In Abhängigkeit von der Natur der Reste  $R^1$  und  $R^2$  wird auch hierbei im Gegensatz zum Stand der Technik eine hohe Selektivität beobachtet. So erhält man z. B. bei dieser Vorgehensweise Isobutylcyclohexyldimethoxysilan (vgl. dazu Gleichung 1) in einer Ausbeute von > 98 % und einer Reinheit > 97 % sowie Diisopropyldimethoxysilan (vgl. dazu Gleichung 2) in einer Ausbeute > 98 % und einer Reinheit > 98 %.

Weitere nach den erfindungsgemäßen Verfahren hergestellte Verbindungen sind den Beispielen 1 bis 6 sowie den Tabellen 1 und 2 zu entnehmen.

#### Beispiel 1 a

##### Isobutylcyclohexyldimethoxysilan

Unter Schutzgas werden 152,0 g Isobutyltrimethoxysilan ( $\approx 0,85$  Mol) gelöst in 50 ml Diethylether vorgelegt. Unter Rühren werden 667 ml einer 1,5 molaren etherischen Lösung von Cyclohexylmagnesiumchlorid so zugetropft, daß sich mäßiger Rückfluß einstellt.

Nach Beendigung der Zugabe läßt man noch einige Stunden unter Rückfluß nachreagieren, versetzt nach Abkühlen des Reaktionsgemisches mit 4,8 g Methanol ( $\approx 0,15$  Mol), läßt einige Minuten nachrühren und filtriert vom ausgefallenen Feststoff ab. Der Filterkuchen wird mit mehreren Portionen Diethylether gewa-

schen. Von den v reinigten Filtraten wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum abgedampft. Es verbleiben 192,7 g ( $\approx$  98,4 % der Theorie) Isobutylcyclohexyldimethoxysilan, welches gemäß Gaschromatographie (GC) eine Reinheit von 98 % aufweist. Isobutyldicyclohexylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

5

#### Beispiel 1 b

##### Isobutylcyclohexyldimethoxysilan

10 Unter Schutzgas werden 24,3 g Magnesiumspäne ( $\approx$  1,0 Mol) mit ca. 10 ml Methyl-tert.-butylether, einem Jod-Kristall und 3,6 g Cyclohexylchlorid ( $\approx$  0,03 Mol) versetzt. Nach Anspringen der Reaktion wird eine Lösung von 152,0 g Isobutyltrimethoxysilan ( $\approx$  0,85 Mol) und 115,0 g Cyclohexylchlorid ( $\approx$  0,97 Mol) in 130 ml Methyl-tert.-butylether unter Rühren so zugetropft, daß sich mäßiger Rückfluß einstellt.

15 Nach Beendigung der Zugabe läßt man noch 2 h unter Rückfluß nachreagieren, versetzt nach Abkühlen des Reaktionsgemisches mit 4,8 g Methanol ( $\approx$  0,15 Mol), läßt einige Minuten nachrühren und filtriert vom ausgefallenen Feststoff ab. Der Filterkuchen wird mit mehreren Portionen Methyl-tert.-butylether gewaschen. Von den vereinigten Filtraten wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum abgedampft. Es verbleiben 192,5 g ( $\approx$  98,4 % der Theorie) Isobutylcyclohexyldimethoxysilan, welches gemäß GC eine Reinheit von 98 % aufweist. Isobutyldicyclohexylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

20 Analog zu der Vorgehensweise im Beispiel 1 erhält man folgende Diorganodimethoxysilane:

#### Beispiel 2

##### Isobutylcyclopentyldimethoxysilan

25

Reinheit: 97 %, Ausbeute: 98 % der Theorie.  
Isobutyldicyclopentylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

#### Beispiel 3

30

##### Isobutyl-sec-butyldimethoxysilan

Reinheit: 98,5 %, Ausbeute: 98,3 % der Theorie.  
Isobutyldi-sec-butylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

35

#### Beispiel 4

##### Isobutyl-n-propyldimethoxysilan

40

Reinheit: 99 %, Ausbeute: 98,2 % der Theorie.  
Isobutyldi-n-propylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

#### Beispiel 5

45

##### Isobutylisopropyldimethoxysilan

Reinheit: 99 % Ausbeute: 98,1 % der Theorie.  
Isobutyldiisopropylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

50 Wie das folgende Beispiel 6 zeigt, kann die Alkylierung von Tetraalkoxysilanen unter Bildung von Dialkyldialkoxysilanen ebenfalls mit hoher Selektivität ablaufen:

#### Beispiel 6

##### Diisopropyldimethoxysilan

55

Unter Schutzgas werden 24,2 g Magnesiumspäne ( $\approx$  1,0 Mol) mit ca. 20 ml Methyl-tert.-butylether, einem Jod-Kristall und 3,1 g 2-Chlorpropan ( $\approx$  0,04 Mol) versetzt. Nach Anspringen der Reaktion wird eine Lösung von 61,9 g Tetramethoxysilan ( $\approx$  0,41 Mol) und 75,4 g 2-Chlorpropan ( $\approx$  0,96 Mol) in 140 ml

Methyl-tert.-butylether unter Rühren so zugetropft, daß sich mäßiger Rückfluß einstellt. Nach Beendigung der Zugabe läßt man noch 6 Stunden nachreagieren, versetzt nach Abkühlen mit 6,0 g Methanol ( $\approx 0,19$  Mol), läßt einige Minuten nachrühren und filtriert vom ausgefallenen Feststoff ab.

Nach Waschen des Filterkuchens mit mehreren Portionen Methyl-tert.-butylether wird das Lösungsmittel von den vereinigten Filtraten abdestilliert. Es verbleiben 70,5 g Diisopropyldimethoxysilan (= 98,5 % der Theorie), welches gemäß GC eine Reinheit von 98 % aufweist. Triisopropylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

Tabelle 1

Synthese von Diorganodialkoxysilanen ausgehend von Monoorganotrialkoxysilanen *)			
Edukt	Grignard-Verbindung	Produkt	Ausbeute (%) gemäß GC
secBuSi(OMe) <sub>3</sub>	iBuMgCl	secBuiBuSi(OMe) <sub>2</sub>	98
iBuSi(OMe) <sub>3</sub>	nPropMgCl	iBunPropSi(OMe) <sub>2</sub>	99
"	iPropMgCl	iBuiPropSi(OMe) <sub>2</sub>	99
"	cPentMgBr	iBucPentSi(OMe) <sub>2</sub>	97
"	cHexMgCl	iBucHexSi(OMe) <sub>2</sub>	98
nOcSi(OEt) <sub>3</sub>	secBuMgCl	nOcsecBuSi(OEt) <sub>2</sub>	97
iPropSi(OProp) <sub>3</sub>	cPentMgCl	iPropcPentSi(OProp) <sub>2</sub>	98

Tabelle 2

Synthese von Diorganodialkoxysilanen ausgehend von Tetraalkoxysilanen *)			
Edukt	Grignard-Verbindung	Produkt	Ausbeute (%) gemäß GC
Si(OMe) <sub>4</sub>	iPropMgCl	(iProp) <sub>2</sub> Si(OMe) <sub>2</sub>	98
Si(OProp) <sub>4</sub>	iAmMgBr	iAm <sub>2</sub> Si(OProp) <sub>2</sub>	96
Si(OProp) <sub>4</sub>	secBuMgCl	secBu <sub>2</sub> Si(OProp) <sub>2</sub>	98
Si(OPent) <sub>4</sub>	secBuMgCl	secBu <sub>2</sub> Si(OPent) <sub>2</sub>	97

Aus dem Vergleichsbeispiel 1 ist ersichtlich, daß nach dem erfindungsgemäßen Verfahren Diorganodialkoxysilane  $R^1R^2Si(OR^3)_2$  auch dann mit hoher Selektivität zugänglich sind, wenn die Reaktion der Monoorganotrialkoxysilane  $R^1Si(OR^3)_3$  mit einem beträchtlichen Überschuß der gegebenenfalls in situ hergestellten Grignard-Verbindung  $R^2MgX$  durchgeführt wird. Selbst unter solchen Bedingungen wird bei geeigneter Wahl der Rest  $R^1$  und  $R^2$  die Bildung von Triorganomonoalkoxysilanen  $R^1R^2_2SiOR^3$  nicht beobachtet.

#### Vergleichsbeispiel 1

#### Versuch der Darstellung von Isobutyldiisopropylmethoxysilan

Analog zu Beispiel 1 werden 8,2 g Magnesiumspäne ( $\approx 0,338$  Mol) mit 25,5 g 2-Chlorpropan ( $\approx 0,338$  Mol) und 30,0 g Isobutyltrimethoxysilan ( $\approx 0,169$  Mol) in 80 ml Methyl-tert.-butylether umgesetzt.

Es entsteht ausschließlich Isobutylisopropyldimethoxysilan. Isobutyldiisopropylmethoxysilan ist gemäß GC nicht nachweisbar.

Aus den in Tabelle 3 aufgeführten Vergleichsbeispielen geht hervor, daß die Reaktion von Monoorganotrialkoxysilanen  $R^1Si(OR^3)_3$  mit tert.-Butylmagnesiumbromid ( $R^2 = t\text{-Butyl}$ ) nicht zur Bildung von entsprechenden Diorganodialkoxysilanen  $R^1R^2Si(OR^3)_2$  führen. Des weiteren wird ersichtlich, daß die Bildung von Alkylaryldialkoxysilanen aus Monoalkyltrialkoxysilanen  $R^1Si(OR^3)_3$  und Arylmagnesiumhalogeniden  $R^2MgX$  mit vergleichsweise geringer Selektivität abläuft, obwohl auch dabei das Diorganodialkoxysilan  $R^1R^2Si(OR^3)_2$  als Hauptprodukt entsteht. Gleiches gilt auch für die Herstellung von Di-n-alkyldialkoxysilanen und Diaryldialkoxysilanen aus Tetraalkoxysilanen.

Tabelle 3

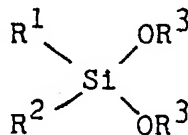
Vergleichsbeispiele *)			
Edukt	Grignard-Verbindung	Produkt	Ausbeute (%) gemäß GC
iBuSi(OMe) <sub>3</sub>	tBuMgCl	-	keine Umsetzung
iBuSi(OMe) <sub>3</sub>	PhMgBr	iBuPhSi(OMe) <sub>2</sub> iBuPh <sub>2</sub> Si(OMe)	71 13
iBuSi(OMe) <sub>3</sub>	pTolMgBr	iBu(pTol)Si(OMe) <sub>2</sub> iBu(pTol) <sub>2</sub> Si(OMe)	50 12
Si(OMe) <sub>4</sub>	n-HexMgBr	nHexSi(OMe) <sub>3</sub> nHex <sub>2</sub> Si(OMe) <sub>2</sub> nHex <sub>3</sub> Si(OMe)	13 77 10
Si(OMe) <sub>4</sub>	pTolMgBr	pTolSi(OMe) <sub>3</sub> pTol <sub>2</sub> Si(OMe) <sub>2</sub> pTol <sub>3</sub> Si(OMe)	7 82 4

\*) Verwendete Abkürzungen:

Me = Methyl, Et = Ethyl, Prop. = Propyl, Am = Amyl, pTol = para-Tolyl, Ph = Phenyl; n = normal, i = iso, sec = sekundär, t = tertiär, c = cyclo, Bu = Butyl, Hex = Hexyl, Pent = Pentyl, Oc = Octyl.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen der allgemeinen Formel



durch Umsetzung von Tetraalkoxysilanen der Formel Si(OR<sup>3</sup>)<sub>4</sub> bzw. Monoorganotrialkoxysilanen der Formel R<sup>1</sup>Si(OR<sup>3</sup>)<sub>3</sub> mit Grignard-Verbindungen der Formel R<sup>2</sup>MgX (X = Cl, Br, J) in geeigneten Lösungsmitteln, gekennzeichnet durch die folgende Bedeutung der Reste R:

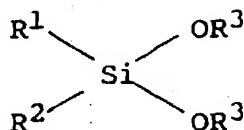
- R<sup>1</sup> = Verzweigte Alkylgruppe mit 3 bis 10 C-Atomen mit sekundärem α - oder β-C-Atom oder Cycloalkylgruppe mit 3 bis 10 C-Atomen  
 R<sup>2</sup> = R<sup>1</sup> oder n-Alkylgruppe mit 3 bis 10 C-Atomen  
 R<sup>3</sup> = Alkylgruppe mit 1 bis 5 C-Atomen, wobei die Reste R<sup>3</sup> gleich oder verschieden sein können, mit der Maßgabe, daß R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> nicht gleichzeitig Cycloalkyl sein können und wobei im Falle von Tetraalkoxysilanen R<sup>2</sup> nicht n-Alkyl bedeutet.

2. Verfahren zur selektiven Herstellung von Dialkyldialkoxysilanen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Reste R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> verzweigte Alkylgruppen mit 3 bis 6 C-Atomen sind.
3. Verfahren zur selektiven Herstellung von Alkylcycloalkyldialkoxysilanen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Reste R<sup>1</sup> verzweigte Alkylgruppen mit 3 bis 6 C-Atomen und die Reste R<sup>2</sup> Cycloalkylgruppen mit 5 bis 7 C-Atomen sind.
4. Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Reste R<sup>3</sup> Methyl- oder Ethylgruppen sind.
5. Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Grignard-Verbindung R<sup>2</sup>MgX in situ gebildet wird.

6. Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Rest X, Cl oder Br ist.
7. Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen nach den Ansprüchen 1 - 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung in Methyl-tert.-butylether durchgeführt wird.
8. Verfahren zur selektiven Herstellung von Diorganodialkoxysilanen nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß nach der Umsetzung ein in Reaktionsgemisch vorhandener Überschuß der Grignard-Verbindung  $R^2MgX$  mit stöchiometrischen Mengen des Alkohols  $R^3OH$  unter Bildung des festen Nebenprodukts  $R^3OMgX$  zersetzt wird.

### Claims

1. Process for the selective preparation of diorganodialkoxysilanes having the general formula



by reacting tetraalkoxysilanes having the formula  $Si(OR^3)_4$ , or monoorganotrialkoxysilanes having the formula  $R^1Si(OR^3)_3$  with Grignard reagents having the formula  $R^2MgX$  ( $X = Cl, Br, I$ ) in suitable solvents, characterised by the following meaning of the radicals R:

$R^1$  is a branched alkyl group having from 3 to 10 carbon atoms with a secondary  $\alpha$ - or  $\beta$ -carbon atom or a cycloalkyl group having from 3 to 10 carbon atoms,

$R^2 = R^1$  or is an n-alkyl group having from 3 to 10 carbon atoms,

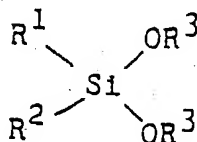
$R^3$  is an alkyl group having from 1 to 5 carbon atoms, it being possible for the radicals  $R^3$  to be identical or different,

with the proviso that  $R^1$  and  $R^2$  may not simultaneously be cycloalkyl and wherein, in the case of tetraalkoxysilanes,  $R^2$  does not represent n-alkyl.

2. Process for the selective preparation of dialkyldialkoxysilanes according to claim 1, characterised in that the radicals  $R^1$  and  $R^2$  are branched alkyl groups having from 3 to 6 carbon atoms.
3. Process for the selective preparation of alkylcycloalkyldialkoxysilanes according to claim 1, characterised in that the radicals  $R^1$  are branched alkyl groups having from 3 to 6 carbon atoms and the radicals  $R^2$  are cycloalkyl groups having from 5 to 7 carbon atoms.
4. Process for the selective preparation of diorganodialkoxysilanes according to claims 1 to 3, characterised in that the radicals  $R^3$  are methyl or ethyl groups.
5. Process for the selective preparation of diorganodialkoxysilanes according to claims 1 to 4, characterised in that the Grignard reagent  $R^2MgX$  is formed in situ.
6. Process for the selective preparation of diorganodialkoxysilanes according to claims 1 to 5, characterised in that the radical X is Cl or Br.
7. Process for the selective preparation of diorganodialkoxysilanes according to claims 1 to 6, characterised in that the reaction is carried out in methyl tert-butyl ether.
8. Process for the selective preparation of diorganodialkoxysilanes according to claims 1 to 7, characterised in that, after the reaction, an excess of the Grignard reagent  $R^2MgX$  present in the reaction mixture is decomposed with stoichiometric amounts of the alcohol  $R^3OH$  forming the solid secondary product  $R^3OMgX$ .

## Revendications

1. Procédé pour la préparation sélective de diorganodialcoxysilanes de formule générale



par réaction de tétraalcoxysilanes de formule  $Si(OR^3)_4$ , respectivement de monoorganotrialcoxysilanes de formule  $R^1Si(OR^3)_3$  avec des composés de Grignard de formule  $R^2MgX$  ( $X = Cl, Br, I$ ), dans des solvants appropriés, caractérisé par les significations suivantes des radicaux R :

- $R^1$  représente un groupe alkyle ramifié avec 3 à 10 atomes de carbone, avec un atome de carbone  $\alpha$  ou  $\beta$  secondaire ou un groupe cycloalkyle avec 3 à 10 atomes de carbone,  
 $R^2$  représente  $R^1$  ou un groupe n-alkyle avec 3 à 10 atomes de carbone,  
 $R^3$  représente un groupe alkyle avec 1 à 5 atomes de carbone, les radicaux  $R^3$  pouvant être identiques ou différents, à la condition que  $R^1$  et  $R^2$  ne peuvent pas être simultanément un cycloalkyle et, dans le cas de tétraalcoxysilanes,  $R^2$  ne signifiant pas un n-alkyle.

2. Procédé pour la préparation sélective de dialkyldialcoxysilanes selon la revendication 1, caractérisé en ce que les radicaux  $R^1$  et  $R^2$  sont des groupes alkyle ramifiés avec 3 à 6 atomes de carbone.

3. Procédé pour la préparation sélective des alkylcycloalkyldialcoxysilanes selon la revendication 1, caractérisé en ce que les radicaux  $R^1$  sont des groupes alkyle ramifiés avec 3 à 6 atomes de carbone et les radicaux  $R^2$  des groupes cycloalkyle avec 5 à 7 atomes de carbone.

4. Procédé pour la préparation sélective de diorganodialcoxysilanes selon les revendications 1 à 3, caractérisé en ce que les radicaux  $R^3$  sont des groupes méthyle ou éthyle.

5. Procédé pour la préparation sélective de diorganodialcoxysilanes selon les revendications 1 à 4, caractérisé en ce que le composé de Grignard  $R^2MgX$  se forme *in situ*.

6. Procédé pour la préparation sélective de diorganodialcoxysilanes selon les revendications 1 à 5, caractérisé en ce que le radical X est Cl ou Br.

7. Procédé pour la préparation sélective de diorganodialcoxysilanes selon les revendications 1 à 6, caractérisé en ce qu'on réalise la réaction dans de l'éther méthyl-tert-butylque.

8. Procédé pour la préparation sélective de diorganodialcoxysilanes selon les revendications 1 à 7, caractérisé en ce que, après la réaction, on décompose l'excédent en composé de Grignard  $R^2MgX$  présent dans le mélange réactionnel par des quantités stoechiométriques d'alcool  $R^3OH$  en formant le sous-produit solide  $R^3OMgX$ .